

JP 54 / 031

日本国特許庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

31.01.01

REC'D 26 MAR 2001

WIPO

PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日

Date of Application:

2000年 1月31日

出願番号

Application Number:

特願2000-027367

出願人

Applicant (s):

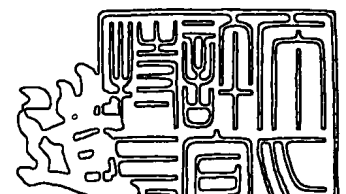
三井化学株式会社

PRIORITY
DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2001年 3月 2日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及川耕



【書類名】 特許願

【整理番号】 C02113-010

【提出日】 平成12年 1月31日

【あて先】 特許庁長官殿

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県市原市千種海岸3番地 三井化学株式会社内

【氏名】 仲 濱 秀 斉

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県市原市千種海岸3番地 三井化学株式会社内

【氏名】 川 崎 雅 昭

【特許出願人】

【識別番号】 000005887

【氏名又は名称】 三井化学株式会社

【代理人】

【識別番号】 100081994

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴 木 俊一郎

【選任した代理人】

【識別番号】 100103218

【弁理士】

【氏名又は名称】 牧 村 浩 次

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 014535

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9710873

特 2 0 0 0 - 0 2 7 3 6 7

【プルーフの要否】

要

【書類名】 明 細 書

【発明の名称】 架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の製造方法およびそのゴム組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを密閉式混練機により混練し、加硫剤もしくは架橋剤と、必要に応じ加硫促進剤もしくは架橋助剤を含む架橋用ゴム組成物の製造方法において、

予め下記の方法により分析してフィラー分散指標 (R) および／または混練状態把握指標 (P) を求めておき、

下記の方法により分析して得られたフィラー分散指標 (N) が、次式

$$\text{フィラー分散性指標 (N)} / \text{フィラー分散性指標 (R)} = 1 \sim 0.8$$

および／または下記の方法により分析して得られた混練状態把握指標 (M) が、次式

$$\text{混練状態把握指標 (M)} / \text{混練状態把握指標 (P)} = 1 \sim 0.85$$

を満足するように、密閉式混練機による混練条件をコントロールすることを特徴とする架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の製造方法；

(1) フィラー分散性指標 (R) : 少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーと、加硫剤もしくは架橋剤と、必要に応じ加硫促進剤もしくは架橋助剤とを 8 インチオープンロールにより、100℃以下で混練して得られた未架橋ゴム組成物から成形した、厚みが均一な架橋ゴムシートの動的弾性率の歪み依存性を測定し、歪みに対して動的弾性率が変化しない部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(a)$ と、歪みによって動的弾性率が大きく変化する部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(b)$ との百分率 $[(E^*(b)/E^*(a)) \times 100]$ を基準となるフィラー分散性指標 (R) とし、

(2) 混練状態把握指標 (P) : 少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを 8 インチオープンロールにより、100℃以下で混練して得られた、加硫剤、架橋剤、加硫促進剤および架橋助剤を含まない未架橋

ゴム組成物の複素粘性率と測定温度との関係を示す式

$$\eta^* = A \exp(-E_a / RT)$$

〔 η^* ：複素粘性率、 E_a ：見かけの活性化エネルギー、 T ：測定温度（°K）、 R ：気体定数、 A ：前指数項〕、または

$$a_T = A \exp(-E_a / RT)$$

〔 a_T ：シフトファクター、 E_a ：見かけの活性化エネルギー、 T ：測定温度（°K）、 R ：気体定数、 A ：前指数項〕

から求められる E_a を基準となる混練状態把握指標（P）とし、

(3) フィラー分散性指標（N）：少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを密閉式混練機により混練し、得られた混練物と、加硫剤もしくは架橋剤と、必要に応じ加硫促進剤もしくは架橋助剤とを 8 インチオープンロールで混練して得られた未架橋ゴム組成物（前記(1)の未架橋ゴム組成物と同じ組成）から成形した、厚みが均一な架橋ゴムシートの動的弾性率の歪み依存性を測定し、歪みに対して動的弾性率が変化しない部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(a)$ と、歪みによって動的弾性率が大きく変化する部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(b)$ との百分率〔 $(E^*(b)/E^*(a)) \times 100$ 〕をフィラー分散性指標（N）とし、

(4) 混練状態把握指標（M）：少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを密閉式混練機で剪断を加えながら、あるいは熱と剪断を加えながら混練して得られた、加硫剤、架橋剤、加硫促進剤および架橋助剤を含まない未架橋ゴム組成物（前記(2)の未架橋ゴム組成物と同じ組成）の複素粘性率と測定温度との関係を示す式

$$\eta^* = A \exp(-E_a / RT)$$

〔 η^* ：複素粘性率、 E_a ：見かけの活性化エネルギー、 T ：測定温度（°K）、 R ：気体定数、 A ：前指数項〕、または

$$a_T = A \exp(-E_a / RT)$$

〔 a_T ：シフトファクター、 E_a ：見かけの活性化エネルギー、 T ：測定温度（°K）、 R ：気体定数、 A ：前指数項〕

から求められる E_a を混練状態把握指標（M）とする。

【請求項 2】

前記補強性フィラーの添加量が、前記エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム 100 重量部に対して 30 重量部以上であることを特徴とする請求項 1 に記載の架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の製造方法。

【請求項 3】

前記補強性フィラーがカーボンブラックであることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の製造方法。

【請求項 4】

少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを密閉式混練機により混練し、加硫剤もしくは架橋剤と、必要に応じ加硫促進剤もしくは架橋助剤を含む架橋用ゴム組成物において、

下記の方法により分析して得られたフィラー分散性指標 (N) とフィラー分散性指標 (R) との比 (N/R) が 1 ~ 0.8 の範囲内、および/または混練状態把握指標 (M) と混練状態把握指標 (P) との比 (M/P) が 1 ~ 0.85 の範囲内にあることを特徴とする架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物；

(1) フィラー分散性指標 (R) : 少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーと、加硫剤もしくは架橋剤と、必要に応じ加硫促進剤もしくは架橋助剤とを 8 インチオープンロールにより、100℃以下で混練して得られた未架橋ゴム組成物から成形した、厚みが均一な架橋ゴムシートの動的弾性率の歪み依存性を測定し、歪みに対して動的弾性率が変化しない部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(a)$ と、歪みによって動的弾性率が大きく変化する部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(b)$ との百分率 $[(E^*(b)/E^*(a)) \times 100]$ を基準となるフィラー分散性指標 (R) とし、

(2) 混練状態把握指標 (P) : 少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを 8 インチオープンロールにより、100℃以下で混練して得られた、加硫剤、架橋剤、加硫促進剤および架橋助剤を含まない未架橋ゴム組成物の複素粘性率と測定温度との関係を示す式

$$\eta^* = A \exp(-Ea/RT)$$

[η^* : 複素粘性率、 Ea : 見かけの活性化エネルギー、 T : 測定温度 ($^{\circ}\text{K}$)、 R : 気体定数、 A : 前指数項]、または

$$a_T = A \exp(-Ea/RT)$$

[a_T : シフトファクター、 Ea : 見かけの活性化エネルギー、 T : 測定温度 ($^{\circ}\text{K}$)、 R : 気体定数、 A : 前指数項]

から求められる Ea を基準となる混練状態把握指標 (P) とし、

(3) フィラー分散性指標 (N): 少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを密閉式混練機により混練し、得られた混練物と、加硫剤もしくは架橋剤と、必要に応じ加硫促進剤もしくは架橋助剤とを 8 インチロールで混練して得られた未架橋ゴム組成物 (前記(1)の 未架橋ゴム組成物と同じ組成) から成形した、厚みが均一な架橋ゴムシートの動的弾性率の歪み依存性を測定し、歪みに対して動的弾性率が変化しない部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(a)$ と、歪みによって動的弾性率が大きく変化する部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(b)$ との百分率 [$(E^*(b)/E^*(a)) \times 100$] をフィラー分散性指標 (N) とし、

(4) 混練状態把握指標 (M): 少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを密閉式混練機で剪断を加えながら、あるいは熱と剪断を加えながら混練して得られた、加硫剤、架橋剤、加硫促進剤および架橋助剤

前記補強性フィラーの添加量が、前記エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム100重量部に対して30重量部以上であることを特徴とする請求項4に記載の架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物。

【請求項6】

前記補強性フィラーがカーボンブラックであることを特徴とする請求項4または5に記載の架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の技術分野】

本発明は、フィラー分散性が良好で混練状態が安定している架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の製造方法およびそのゴム組成物に関し、さらに詳しくは、少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラー、たとえばカーボンブラック、特に該エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム100重量部に対して30重量部以上の量のカーボンブラックとを密閉式混練機により混練し、得られた混練物に加硫剤もしくは架橋剤と、加硫促進剤もしくは架橋助剤を配合して、フィラー分散性が良好で、混練状態が安定している架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物を製造する方法およびそのゴム組成物に関する。

【0002】

【発明の技術的背景】

ゴム製品の品質には、ゴムのコンパウンド技術が大きく影響している。特にEPDM等のエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムは、それ自体に機械的強度がないため、カーボンブラック等の補強性フィラーを多く必要とする。

【0003】

しかしながら、このフィラーをエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム中に分散させるに当たり、エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムのようなゴムの粘度は、樹脂に比べて一般に高いため、エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム中にフィラーを微分散させることは難しい技術である。

【0004】

そこで、従来は、エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムとフィラーとの混練に際し、より大きな剪断を加えるか、あるいは混練時間を長くしてフィラーを微分散させる方法を採用し、設備投資コストや生産性を低下させたくないため、製品物性を、加工性を観ながら、なるべく効率よく混練できる条件を選び出し混練条件を決定している。

【0005】

しかしながら、その混練状態、フィラー分散性に対する明確な指標がなかったため、曖昧な条件決めしかできないでいるのが現状である。

また、季節によって気温および湿度が大きく変化することで、エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムとフィラーとの混練状態は大きく変化することは知られている。従来は、この変化した混練状態について簡便に解析する指標がなかったため、生産現場で、押出製品の断面形状（ダイスウェル）が変化したり、製品に原因不明の気泡が多発するなどの現象が起こっていても対策が打てないことも多々あった。このような場合、天候による温度、湿度や、混練機の混練能力（剪断力、分散力）とが、偶然かみ合わさって上記のような不具合を生じていることが多く、一定時間（期間）が過ぎると、あるいは同一配合であっても混練機が異なると不具合が生じないなど、その原因が捕らえ難いため十分に解析されてこなかったのが現状である。

【0006】

フィラー分散性については、これまで電気抵抗値の測定法や顕微鏡による方法、ゴムコンパウンドに光を当てて、その表面反射の程度によって判断する方法が知られているが、上記不具合の原因対策の指標としては不十分である。その理由は、フィラー分散によって変化する値であることは確かであるが、逆に水分の影響やポリマーの分子量分布などの影響により変化するため、はっきりした結果が得られないのである。さらに、EPR、EPDM等のエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムは、非極性のポリマーであるため、極性を示すカーボンブラックと混練する場合、密閉式混練機で混練すればするほどダイスウェルが変化したり、物性が悪化することが知られている。これは、一般に擬似ゲル化現象として知られており、ML(1+4) 100℃ムーニー粘度では現れることは少ないが、

ML (1 + 59) 100℃ : 約1時間回し続けると、その測定時間の中で、ムーニー粘度(トルク)が大幅に上昇する現象を容易に観察することができる。いわゆるムーニー粘度計で回転した状態は、すなわち、ゴム加工機の押出機のパレル中や射出成形機のポット中を想定したものであり、加硫剤、加硫促進剤が入っていないにもかかわらず起こる現象である。そのため、エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムにカーボンブラックが配合されているゴム組成物は、これまでの通常のフィラー分散性指標とは別に、混練状態を把握する指標も必要であった。

【0007】

このほかに、フィラー分散指標と混練状態把握指標の両方を評価可能な精度の高い分析手段として、広幅NMRによる方法(木内 保太郎・伊藤 眞義:日本ゴム協会誌, 72, 1999)が知られている。しかしながら、分析コストが高いこと、評価結果のレスポンスが遅いことから、工場での品質安定のために用いる分析手段としては不適である。

【0008】

したがって、密閉式混練機によって得られる架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物中のフィラー分散性と混練状態を客観的に評価できる、新たな分析指標を見出し、エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーたとえばカーボンブラックとを密閉式混練機により混練し、得られた混練物と、加硫剤もしくは架橋剤と、加硫促進剤もしくは架橋助剤とを8インチロールなどの混練機により混練して、フィラー分散性が良好で、混練状態が安定している架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物を製造する方法、およびそのゴム組成物の出現が望まれている。

【0009】

【発明の目的】

本発明は、上記のような従来技術に伴う問題を解決しようとするものであって、密閉式混練機によって得られる架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物中のフィラー分散性と混練状態を客観的に評価できる、新たな分析指標を見出し、エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーたとえばカーボンブラック、特に該エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム100重

量部に対して 30 重量部以上の量のカーボンブラックとを密閉式混練機により混練し、得られた混練物と、加硫剤もしくは架橋剤と、加硫促進剤もしくは架橋助剤とを 8 インチロールなどの混練機により混練して、フィラー分散性が良好で、混練状態が安定している架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物を製造する方法、およびそのゴム組成物を提供することを目的としている。

【0010】

【発明の概要】

本発明に係る架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の製造方法は、

少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーたとえば該エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム 100 重量部に対して 30 重量部以上の量の補強性フィラーとを密閉式混練機により混練し、加硫剤もしくは架橋剤と、必要に応じ加硫促進剤もしくは架橋助剤を含む架橋用ゴム組成物の製造方法において、

予め下記の方法により分析してフィラー分散指標 (R) および／または混練状態把握指標 (P) を求めておき、

下記の方法により分析して得られたフィラー分散指標 (N) が、次式

$$\text{フィラー分散性指標 (N)} / \text{フィラー分散性指標 (R)} = 1 \sim 0.8$$

および／または下記の方法により分析して得られた混練状態把握指標 (M) が、次式

$$\text{混練状態把握指標 (M)} / \text{混練状態把握指標 (P)} = 1 \sim 0.85$$

を満足するように、密閉式混練機による混練条件をコントロールすることを特徴としている。

(1) フィラー分散性指標 (R) : 少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーと、加硫剤もしくは架橋剤と、必要に応じ加硫促進剤もしくは架橋助剤とを 8 インチオープンロールにより、100℃以下で混練して得られた未架橋ゴム組成物から成形した、厚みが均一な架橋ゴムシートの動的弾性率の歪み依存性を測定し、歪みに対して動的弾性率が変化しない部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(a)$ と、歪みによって動的弾性率が

大きく変化する部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(b)$ との百分率 $[(E^*(b)/E^*(a)) \times 100]$ を基準となるフィラー分散性指標 (R) とし、

(2) 混練状態把握指標 (P) : 少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを 8 インチオープンロールにより、100℃以下で混練して得られた、加硫剤、架橋剤、加硫促進剤および架橋助剤を含まない未架橋ゴム組成物の複素粘性率と測定温度との関係を示す式

$$\eta^* = A \exp(-Ea/RT)$$

[η^* : 複素粘性率、 Ea : 見かけの活性化エネルギー、 T : 測定温度 (°K)、 R : 気体定数、 A : 前指数項]、または

$$a_T = A \exp(-Ea/RT)$$

[a_T : シフトファクター、 Ea : 見かけの活性化エネルギー、 T : 測定温度 (°K)、 R : 気体定数、 A : 前指数項]

から求められる Ea を基準となる混練状態把握指標 (P) とし、

(3) フィラー分散性指標 (N) : 少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを密閉式混練機により混練し、得られた混練物と、加硫剤もしくは架橋剤と、必要に応じ加硫促進剤もしくは架橋助剤とを 8 インチオープンロールで混練して得られた未架橋ゴム組成物 (前記(1)の未架橋ゴム組成物と同じ組成) から成形した、厚みが均一な架橋ゴムシートの動的弾性率の歪み依存性を測定し、歪みに対して動的弾性率が変化しない部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(a)$ と、歪みによって動的弾性率が大きく変化する部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(b)$ との百分率 $[(E^*(b)/E^*(a)) \times 100]$ をフィラー分散性指標 (N) とし、

(4) 混練状態把握指標 (M) : 少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを密閉式混練機で剪断を加えながら、あるいは熱と剪断を加えながら混練して得られた、加硫剤、架橋剤、加硫促進剤および架橋助剤を含まない未架橋ゴム組成物 (前記(2)の未架橋ゴム組成物と同じ組成) の複素粘性率と測定温度との関係を示す式

$$\eta^* = A \exp(-Ea/RT)$$

〔 η^* ：複素粘性率、 Ea ：見かけの活性化エネルギー、 T ：測定温度（°K）、 R ：気体定数、 A ：前指数項〕、または

$$a_T = A \exp(-Ea/RT)$$

〔 a_T ：シフトファクター、 Ea ：見かけの活性化エネルギー、 T ：測定温度（°K）、 R ：気体定数、 A ：前指数項〕

から求められる Ea を混練状態把握指標（ M ）とする。

【0011】

前記補強性フィラーとしては、カーボンプラックが好ましく用いられる。

本発明に係る架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の製造方法によれば、フィラー分散性が良好で、混練状態が安定している架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物が得られる。

【0012】

また本発明に係る架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物は、少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーたとえば該エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム100重量部に対して30重量部以上の量の補強性フィラーとを密閉式混練機により混練し、加硫剤もしくは架橋剤と、必要に応じ加硫促進剤もしくは架橋助剤を含む架橋用ゴム組成物において、

前記の方法により分析して得られたフィラー分散性指標（ N ）とフィラー分散性指標（ R ）との比（ N/R ）が1～0.8の範囲内、および／または混練状態把握指標（ M ）と混練状態把握指標（ P ）との比（ M/P ）が1～0.85の範囲内にあることを特徴としている。

【0013】

前記補強性フィラーとしては、カーボンプラックが好ましく用いられる。

本発明に係る架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物は、フィラー分散性が良好で、混練状態が極めて安定している。

【0014】

本発明者らが新に見出した、上記のフィラー分散性指標の比（ N/R ）および混練状態把握指標の比（ M/P ）をそれぞれフィラー分散性、混練状態の客観的

な評価指標として採用することにより、始めて、季節によって変化する温度、湿度、剪断状態に応じた密閉式混練機の混練条件を容易に設定することが可能となり、その結果、混練機として密閉式混練機を用いても、フィラー分散性に優れ、良好な押出加工性、射出成形性を有し、良好な物性を有する成形体を成形できる架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物を安定して製造することが可能になった。

【0015】

【発明の具体的説明】

以下、本発明に係る架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の製造方法およびそのゴム組成物について具体的に説明する。

【0016】

本発明に係る架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の製造方法では、少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーたとえば該エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム100重量部に対して30重量部以上の量の補強性フィラーとを密閉式混練機により混練し、加硫剤もしくは架橋剤と、必要に応じ加硫促進剤もしくは架橋助剤と、軟化剤等のオレフィン系ゴムの添加剤として通常使用されている添加剤とを含む架橋用ゴム組成物を製造する。

【0017】

本発明で用いられるエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムとしては、特に制限はなく、従来公知のエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムを用いることができ、たとえばEPR等のエチレン・ α -オレフィン共重合体ゴム、EPDM等のエチレン・ α -オレフィン・（非）共役ポリエン共重合体ゴムなどが挙げられる。

【0018】

本発明で用いられる補強性フィラーとしては、従来公知の補強性フィラーを用いることができ、具体的には、カーボンブラック、無水ケイ酸、含水ケイ酸、ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム、クレー、タルク、炭酸カルシウムなどが挙げられる。中でも、カーボンブラックが好ましく用いられる。

【 0 0 1 9 】

カーボンブラック等の補強性フィラーの添加量は、架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の用途によって異なるが、エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム 1 0 0 重量部に対して、3 0 重量部以上、通常は 3 0 ~ 3 0 0 重量部、好ましくは 6 0 ~ 3 0 0 重量部、さらに好ましくは 1 0 0 ~ 3 0 0 重量部の割合で用いられる。

【 0 0 2 0 】

本発明で用いられる加硫剤としては、加硫剤として従来公知のイオウ、イオウ化合物などが挙げられる。

本発明においては、これらの加硫剤とともに、加硫促進剤を併用することが望ましい。加硫促進剤としては、従来公知の加硫促進剤であれば特に制限はない。

【 0 0 2 1 】

また、本発明で用いられる架橋剤としては、有機過酸化物などが挙げられる。有機過酸化物は、従来より E P R、E P D M の架橋に際して使用されている有機過酸化物であれば特に制限はない。

【 0 0 2 2 】

本発明においては、有機過酸化物とともに、架橋助剤を併用することが望ましい。架橋助剤としては、従来公知の架橋助剤であれば特に制限はない。

また、本発明に係る架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の

体ゴムと、補強性フィラーと、加硫剤もしくは架橋剤と、必要に応じ加硫促進剤もしくは架橋助剤とを 8 インチオープンロールにより、100℃以下で混練して得られた未架橋ゴム組成物から成形した、厚みが均一な架橋ゴムシートの動的弾性率の歪み依存性を測定し、歪みに対して動的弾性率が変化しない部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(a)$ と、歪みによって動的弾性率が大きく変化する部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(b)$ との百分率 $[(E^*(b)/E^*(a)) \times 100]$ を基準となるフィラー分散性指標 (R) とする。

【0024】

この厚みが均一な架橋ゴムシートの動的弾性率の歪み依存性は、レオメトリックス社製の粘弾性試験器 RSA II を用いて測定する。この測定方法の詳細は、実施例の項で説明する。

【0025】

上記の「歪みに対して動的弾性率が変化しない部分」とは、上記加硫ゴムシート（架橋ゴムシートを含む）のうち、動的弾性率の変化率が 3 % 未満となる部分を指す（以下同じ）。また、上記の「歪みによって動的弾性率が大きく変化する部分」とは、上記加硫ゴムシートのうち、動的弾性率の変化率が 3 % 以上となる部分を指す（以下同じ）。

(2) 混練状態把握指標 (P) : 少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを 8 インチオープンロールにより、100℃以下で混練して得られた、加硫剤、架橋剤、加硫促進剤および架橋助剤を含まない未架橋ゴム組成物の複素粘性率と測定温度との関係を示す式

$$\eta^* = A \exp(-Ea/RT)$$

[η^* : 複素粘性率、 Ea : 見かけの活性化エネルギー、 T : 測定温度 (°K)、 R : 気体定数、 A : 前指数項]、または

$$a_T = A \exp(-Ea/RT)$$

[a_T : シフトファクター、 Ea : 見かけの活性化エネルギー、 T : 測定温度 (°K)、 R : 気体定数、 A : 前指数項]

から求められる Ea を基準となる混練状態把握指標 (P) とする。

【0026】

上記混練状態把握指標（P）は、レオメトリックス社製の粘弾性試験器 R S A II を用いて測定する。この測定方法の詳細は、実施例の項で説明する。

次に、少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを上記と全く同じ組成割合で密閉式混練機により混練し、加硫剤もしくは架橋剤と、必要に応じ加硫促進剤もしくは架橋助剤と、軟化剤等のオレフィン系ゴムの添加剤として通常使用されている添加剤とを上記と全く同じ組成割合で含む架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物を製造するに際して、下記の方法により分析して、フィラー分散性指標（N）および／または混練状態把握指標（M）を求める。

(3) フィラー分散性指標（N）：少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを密閉式混練機により混練し、得られた混練物と、加硫剤もしくは架橋剤と、必要に応じ加硫促進剤もしくは架橋助剤とを 8 インチオープンロールで混練して得られた未架橋ゴム組成物（前記(1)の未架橋ゴム組成物と同じ組成）から成形した、厚みが均一な架橋ゴムシートの動的弾性率の歪み依存性を測定し、歪みに対して動的弾性率が変化しない部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(a)$ と、歪みによって動的弾性率が大きく変化する部分から、ある特定の歪みを特定して求めた動的弾性率 $E^*(b)$ との百分率 $[(E^*(b)/E^*(a)) \times 100]$ をフィラー分散性指標（N）とする。

【0027】

フィラー分散性指標（N）は、レオメトリックス社製の粘弾性試験器 R S A I I を用いて測定する。この測定方法の詳細は、実施例の項で説明する。

(4) 混練状態把握指標（M）：少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、補強性フィラーとを密閉式混練機で剪断を加えながら、あるいは熱と剪断を加えながら混練して得られた、加硫剤、架橋剤、加硫促進剤および架橋助剤を含まない未架橋ゴム組成物（前記(2)の未架橋ゴム組成物と同じ組成）の複素粘性率と測定温度との関係を示す式

$$\eta^* = A \exp(-Ea/RT)$$

〔 η^* ：複素粘性率、 Ea ：見かけの活性化エネルギー、 T ：測定温度（°K）〕

）、 R ：気体定数、 A ：前指数項）、または

$$a_T = A \exp(-E_a / RT)$$

〔 a_T ：シフトファクター、 E_a ：見かけの活性化エネルギー、 T ：測定温度（°K）、 R ：気体定数、 A ：前指数項〕

から求められる E_a を混練状態把握指標（ M ）とする。

【0028】

混練状態把握指標（ M ）は、レオメトリックス社製の粘弾性試験器 RSA II を用いて測定する。この測定方法の詳細は、実施例の項で説明する。

そして、上記のようにして得られたフィラー分散指標（ N ）が、次式

$$\text{フィラー分散性指標（N）} / \text{フィラー分散性指標（R）} = 1 \sim 0.8$$

および／または上記のようにして得られた混練状態把握指標（ M ）が、次式

$$\text{混練状態把握指標（M）} / \text{混練状態把握指標（P）} = 1 \sim 0.85$$

を満足するように、密閉式混練機による混練条件をコントロールする。

【0029】

フィラー分散性指標（ N ）／フィラー分散性指標（ R ）の値が $1 \sim 0.8$ の範囲内にある場合は、密閉式混練機で混練されたゴム組成物中におけるフィラー分散性は良好であると評価することができる。

【0030】

また、混練状態把握指標（ M ）／混練状態把握指標（ P ）の値が 0.85 よりも小さい場合は、密閉式混練機で混練されたゴム組成物中に、擬似的ゲルが発生する可能性があることを示しており、擬似的ゲルが発生した場合には押出成形においてダイスウェルが小さくなり、その加硫（架橋）ゴム物性が悪化することとなる。なお、混練り状態を把握する指標として通常管理されているムーニー粘度〔 $ML(1+4) 100^\circ C$ 〕値では、その変化を見ることはできない。

【0031】

本発明者らは、エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムとカーボンブラックとを配合する系において、混練すればするほど変化するものは、ポリマーとフィラー（カーボンブラック）との界面に生じる擬似的ゲル生成であり、この擬似的ゲルを生じさせないようにするためには、そのゲル発生点にラジカル捕捉効果と

して働く、酸素（空気）を供給すればよいことを見出した。

【0032】

密閉式混練機中への酸素の供給は、フローティングウエイトを上下動させることにより可能である。ただ、本操作を何度も繰り返すと、ゴム組成物を押さえ付ける力を除くことになり、フィラーを十分に分散させることができなくなるため、混練時間が長くなり、その結果、目的とする架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の生産速度が低下することになる。

【0033】

本発明に係る架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の製造方法においては、本発明者らが新に見出した、フィラー分散性を客観的に評価できるフィラー分散性指標と、混練状態を客観的に評価できる混練状態把握指標を採用し、フィラー分散指標（N）が、次式

$$\text{フィラー分散性指標（N）} / \text{フィラー分散性指標（R）} = 1 \sim 0.8$$

および／または混練状態把握指標（M）が、次式

$$\text{混練状態把握指標（M）} / \text{混練状態把握指標（P）} = 1 \sim 0.85$$

を満足するように、密閉式混練機による混練条件をコントロール、たとえば密閉式混練機に備え付けられているフローティングウエイトを上下動させて密閉式混練機に酸素を供給するので、擬似的ゲルを発生させることなく、フィラー分散性が良好で、混練状態が安定している架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物を最も経済的に生産することができる。フローティングウエイトとは、混練機密閉部の重しの役目をするものであり、その上下動は、通常は、その上部にふき上がった配合材をかき落とす（掃除）ために行われる行為である。

【0034】

本発明で設定したゴム組成物のフィラー分散性指標（R）および混練状態把握指標（P）は、評価するゴム組成物の組成が異なると、評価するゴム組成物のフィラー分散性指標（N）および混練状態把握指標（M）と比較することはできないので、評価するゴム組成物の組成を上記設定したゴム組成物の組成と同一にする必要がある。すなわち、設定するゴム組成物の組成を他の組成に変更する場合には、その変更したゴム組成物のフィラー分散性指標（R）および混練状態把握

指標（P）を新に求めておく必要がある。

【0035】

本発明では、ゴム組成物として最も良好な状態を得ることができていると考えられる、8インチオープンロールで得られたゴム組成物のフィラー分散性指標（R）および／または混練状態把握指標（P）を求め、これらの指標を基準として、フィラー分散性指標（R）および／または混練状態把握指標（P）と、密閉式混練機で得られたゴム組成物のフィラー分散性指標（N）および／または混練状態把握指標（M）との比較を行なうことで、理想的な状態からのずれを把握し、その理想的な状態となるように、密閉式混練機の混練条件、具体的には、配合充填率、回転速度、フローティングウェイトの上下動のタイミングをコントロールする。

【0036】

なお、8インチオープンロールによる混練法では、混練状態を良好にすることができるが、ゴム組成物の大量生産には向いていない。

8インチオープンロールでは、ゴム組成物のうち剪断が加わっている部分には常に酸素供給されているため、擬似的ゲルが発生しないこと、また、ロール間間隙が狭く、せん断力が強いこと、材料の流動を手でコントロールしながら混練できるため、フィラー分散性が極めて良好で、混練状態が安定している。8インチオープンロールにより混練したゴム組成物は、密閉式混練機により混練するゴム組成物のフィラー分散性および混練状態を把握する上で、基準とするゴム組成物として採用することができる。

【0037】

本発明に係る架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物は、上記の、本発明に係る架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の製造方法により調製される。

【0038】

【発明の効果】

本発明に係る架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の製造方法によれば、フィラー分散性が良好で、混練状態が安定している架橋用エチレン

・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物を経済的に得ることができる。具体的には、エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム、補強性フィラー等の混練時に、リボン割れを起こすこともなく、また、得られたゴム組成物は、押出加工性、射出成形性が良好で、引張強度等の機械的強度特性、圧縮永久歪み性などが良好な成形体を提供することができる。

【0039】

本発明に係る架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物は、前記のフィラー分散性指標(N)とフィラー分散性指標(R)との比(N/R)が1~0.8の範囲内、および/または混練状態把握指標(M)と混練状態把握指標(P)との比(M/P)が1~0.85の範囲内にあるので、フィラー分散性が良好で、混練状態が安定している。

【0040】

【実施例】

以下、本発明を実施例により説明するが、本発明は、これら実施例により何ら限定されるものではない。

【0041】

なお、実施例および比較例における引張強度(T_B)、引張伸び(E_B)、および圧縮永久歪み(C_S)は、JIS K 6253に従って行なった。

また、実施例等におけるフィラー分散性指標および混練状態把握指標は、それぞれ以下の条件で求めた。

(1) フィラー分散性指標

レオメトリックス社製の粘弾性試験器 RSA II;

周波数範囲 0.0016~16 Hz

振幅範囲 ± 0.5 mm

歪み分解能 ± 0.05 μ m

最大加重 9.81 N

位相角分解能 ± 0.1 度

測定感度 1 g

温度勾配速度 0.1 度から 50 度/分

測定条件；

初期加重 5 0 g (取り付けた短冊状試料のたわみ解消のため)
 歪み 0. 0 1 から 2 %
 周波数 1 0 H z
 測定温度 2 5 ℃ (温度制御により)
 測定 動的弾性率 (動的ヤング率) (E^*) の歪み依存性

上記の粘弾性試験器に動的弾性率測定用の短冊状試料を取り付け、取り付けた後、短冊状試料に撓みがないことを確認して、動的弾性率 (E^*) の歪み依存性を測定した。

(2) 混練状態把握指標

レオメトリックス社製の粘弾性試験器 R D S II

変換器

トルク範囲 2, 0 0 0 m g · c m
 ドリフト (Drift) 0. 1 % フルスケール時間

測定条件

初期加重 0 g
 歪み 1 %
 周波数 1 0 H z
 測定温度 2 1 0 ℃、1 9 0 ℃、1 7 0 ℃ (温度制御により)
 測定 複素粘性率 (η^*) の温度依存性から求まる 1 9 0 ℃でのシフトファクター a_T の (図 3) 温度依存性から $E a$ ((kJ/mol) の活性化エネルギー) を算出

<活性化エネルギー値の求め方>

(1) 図 2 のように、混練したコンパウンドの温度に対する複素粘性率 (η^*) と周波数との関係を測定して求める。

(2) W L F の関係より、1 9 0 ℃での複素粘性率 (η^*) と周波数との関係を求めるべくシフトファクター (a_T) を下式より求め、シフトファクター (a_T) の温度依存性 ($a_T = A \exp [-E a / R (T - T_{ref.})]$) から、活性化エネルギー (kJ/mol ; $E a$) を算出する。

【0042】

WLF式；

温度 T の粘度を η_T 、ある基準温度 T_0 の粘度を η_{T0} とする。

$$\eta_T = a_T \eta_{T0}$$

【0043】

【実施例1～6】

〔混練状態把握指標（P）〕

エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムとしてエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネン共重合体ゴム〔エチレン／プロピレンのモル比＝70／30、ヨウ素価＝20〕100重量部と、カーボンブラック〔商品名 旭60HG、旭カーボン（株）製〕165重量部と、軟化剤として〔商品名 PW-380〕70重量部とを、8インチオープンロールを用い、60℃で混練し、加硫剤および加硫促進剤を含まない未加硫ゴム組成物を得た。

【0044】

次に、この未加硫ゴム組成物を約20gサンプリングし、50トンプレス機を用い、160℃で6分、余熱で2分加圧し、水で5分間冷却し、厚み2mmの10cm角の未加硫ゴムシートを得た。

【0045】

この未加硫ゴムシートを、直径25mmの円状に打ち抜いて、複素粘性率測定用試験片とした。この試験片について、上記レオメトリックス社製の粘弾性試験器 RDSIIで平行プレートを用いて複素粘性率（ η^* ）を前記条件で測定した。

【0046】

すなわち、この試験片を210℃に加熱して層内が210℃で安定するまで6分間保持し、その後、210℃、190℃、170℃での複素粘性率（ η^* ）を測定し、前記式よりシフトファクター（ a_T ）を算出した。具体的には、この試験片を210℃に加熱して層内が210℃で安定するまで6分間保持し、その後、210℃から190℃、170℃と連続的に複素粘性率（ η^* ）を測定するに 当たり、210℃での複素粘性率測定終了後、-5℃／分の速度で19

0℃とした。層内が190℃で安定するまで6分間保持したのち、190℃での複素粘性率(η^*)を測定し、同上条件で170℃として170℃での複素粘性率(η^*)の測定を行なった。そして、シフトファクター(a_T)と測定温度(T)との関係から見かけの活性化エネルギー(E_a)値(kJ/mol)すなわち混練状態把握指標(P)を算出した。

〔フィラー分散性指標(R)〕

次に、上記の加硫剤および加硫促進剤を含まない未加硫ゴム組成物を8インチオープンロールに300g巻き付け、これに、加硫剤として硫黄1.5phr、加硫促進剤としてノクセラーM〔商品名；大内新興化学工業(株)製〕0.5phr、ノクセラーTT〔商品名；大内新興化学工業(株)製〕1.0phrを投入し、70℃で混練し、未加硫ゴム組成物を得た。

〔0047〕

この未加硫ゴム組成物から、50トンプレス機を用い、160℃、8分の条件でプレス加硫し、厚み1mmの加硫ゴムシートを得た。そして、この加硫ゴムシートから、幅10mm、長さ30mmとなるように打ち抜き、短冊状試料を作製した。

〔0048〕

この短冊状試料について、上記レオメトリックス社製の粘弾性試験器 RSA IIを用い、前記条件で動的弾性率の歪み依存性を測定した。

この動的弾性率の歪み依存性をグラフにとり、たとえば図1のように、歪み(ϵ)に対して動的弾性率(E^*)が変化しない部分から、歪み(ϵ)が0.01%のときの加硫ゴムシートの動的弾性率 $E^*(a)$ と、動的弾性率(E^*)が大きく変化した部分から、歪み(ϵ)が2%のときの動的弾性率 $E^*(b)$ を求め、下記の式よりフィラー分散性指標(R)を算出した。

〔0049〕

$$R(\%) = (E^*(b)/E^*(a)) \times 100$$

〔混練状態把握指標(M)〕

エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムとしてエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネン共重合体ゴム〔エチレン/プロピレンのモル比=70/3

0、ヨウ素価＝20] 100重量部と、カーボンブラック〔商品名 旭60HG、旭カーボン（株）製〕30重量部と、軟化剤として〔商品名 PW-380〕70重量部とを、密閉式混練機（バンバリーミキサー、以下同じ）として、神戸製鋼所社製の1.7リットルBB2型バンバリーミキサーを用い、混練前温度を50℃に合わせて混練した。50、110、240、360秒後のダンプアウト時の温度は、それぞれ132℃、145℃、175℃であった。この混練り条件によって加硫剤および加硫促進剤を含まない未加硫ゴム組成物を得た。

【0050】

実施例1、実施例2、実施例3および実施例5における上記の密閉式混練機による混練は、JIS K 6299に規定されている混練法（A1法）により行ない、混練時間はそれぞれ110秒、50秒、240秒、360秒であった。

【0051】

また、実施例4および実施例6における上記の密閉式混練機による混練は、JIS K 6299に規定されている混練法（A2法）で行ない、その混練中に、掃除のために使用されるフローティングウェイトの上下動を2回行なった。混練時間はそれぞれ240秒、360秒であった。

【0052】

次に、上記の加硫剤および加硫促進剤を含まない未加硫ゴム組成物を約20gサンプリングし、50トンプレス機を用い、160℃で6分、余熱で2分加圧し、水で5分間冷却し、厚み2mmの10cm角の未加硫ゴムシートを得た。

【0053】

この未加硫ゴムシートを、直径25mmの円状に打ち抜いて、複素粘性率測定用試験片とした。この試験片について、上記レオメトリックス社製の粘弾性試験器 RDSIIで平行プレートを用いて複素粘性率（ η^* ）を前記条件で測定した。

【0054】

すなわち、この試験片を210℃に加熱して層内が210℃で安定するまで6分間保持し、その後、210℃、190℃、170℃での複素粘性率（ η^* ）を測定し、前記式よりシフトファクター（ a_T ）を算出した。そして、シフト

ファクター (a_T) と測定温度 (T) との関係から見かけの活性化エネルギー (E_a) 値 (kJ/mol) すなわち混練状態把握指標 (M) を算出した。

〔フィラー分散性指標 (N) 〕

次に、密閉式混練機内から加硫剤および加硫促進剤を含まない未加硫ゴム組成物 300 g を 8 インチオープンロールに巻き付け、さらに加硫剤として硫黄 1.5 phr、加硫促進剤としてノクセラー M [商品名；大内新興化学工業（株）製] 0.5 phr、ノクセラー TT [商品名；大内新興化学工業（株）製] 1.0 phr を投入、混練した。

【0055】

この際のロール混練条件は、

①フロントロール温度／バックロール温度：60℃／60℃

②ロールガイド幅：40 cm

③ロール間隙：1 mm

とした。

【0056】

練り方法として切り返し左右各 3 回丸目通し 8 回を行なった後、ロール間隙を 3 mm として未加硫ゴム組成物の 3 mm シートを作製した。

この未加硫ゴム組成物から、50 トンプレス機を用い、160℃、8 分の条件でプレス加硫し、厚み 1 mm の加硫ゴムシートを得た。そして、この加硫ゴムシートから、幅 10 mm、長さ 30 mm となるように打ち抜き、短冊状試料を作製した。

【0057】

この短冊状試料について、上記レオメトリックス社製の粘弾性試験器 RSA II を用い、前記条件で動的弾性率の歪み依存性を測定した。

この動的弾性率の歪み依存性をグラフにとり、たとえば図 1 のように、歪みに対して動的弾性率が変化しない部分から、歪みが 0.01 % のときの加硫ゴムシートの動的弾性率 $E^*(a)$ と、動的弾性率が大きく変化した部分から、歪みが 2 % のときの動的弾性率 $E^*(b)$ を求め、下記の式よりフィラー分散性指標 (N) を算出した。

【0058】

$$N(\%) = (E^*(b) / E^*(a)) \times 100$$

結果を第1表に示す。

また、上記の加硫剤および架橋促進剤を含む未加硫ゴム組成物を用いて、下記の条件で押出成形し、ダイスウェル比を求めるとともに、得られた押出成形品の押出し肌を観察し、下記の評点で評価した。

<押出成形条件>

50mmφ押出成形機

ダイス開口部の幅 : φ8mm

長さ : 5mm

押出樹脂温度 : 80℃

樹脂押出速度 : 20m/分

<押出し肌の評点>

5 …… 光沢を持った平滑な表面

4 …… 平滑な表面

3 …… くすみがあるが、平滑な表面

2 …… くすみがあり、部分部分に凸凹がある表面

1 …… さらさらとした表面

【0059】

【比較例】

実施例1において、実施例1と同じ配合、同じ混練時間(50秒)で、密閉式混練機温度を予めスチームによって170℃まで上昇した状態で混練した以外は、実施例1と同様に行なった。

【0060】

結果を第1表に示す。

【0061】

【表 1】

第 1 表

	基準材の 混練状態	実 施 例						比較例
		1	2	3	4	5	6	
密閉式混練機による混練時間 [秒]								
混練法 (A 1 法)	-	50	110	240	-	360	-	50
混練法 (A 2 法)	-	-	-	-	240	-	360	-
混練状態把握指標 (P)								
見かけの活性化エネルギー [kJ/mol]	118	-	-	-	-	-	-	-
混練状態把握指標 (M)								
見かけの活性化エネルギー [kJ/mol]	-	105	104	77	104	65	103	45
M/P	1.0	0.89	0.88	0.65	0.88	0.55	0.87	0.38
フィラー分散性指標 (R)	66	-	-	-	-	-	-	-
フィラー分散性指標 (N)	-	30	55	59	59	63	63	23
動的弾性率 $E' (a) \times 10^7$ [kg/cm ²]	-	5.0	4.3	3.2	3.2	2.8	2.8	6.1
動的弾性率 $E' (b) \times 10^8$ [kg/cm ²]	-	1.5	2.4	1.9	1.9	1.8	1.8	1.4
N/R	1.0	0.45	0.83	0.90	0.89	0.95	0.96	0.35
ダイスウェル比 [%]	121	128	121	108	121	102	122	103
押出し肌	5	1	4	4	5	5	5	1
T _B [MPa]	15.1	11.2	13.2	9.4	14.3	8.5	15.1	7.3
E _B [%]	620	450	560	450	580	430	610	385
C _s (70°C-22hrs) [%]	19	39	25	37	22	39	20	45

【図面の簡単な説明】

【図 1】

図 1 は、フィラー分散性指標の測定法を説明するための動的弾性率の歪み依存性を示すグラフの例である。

【図 2】

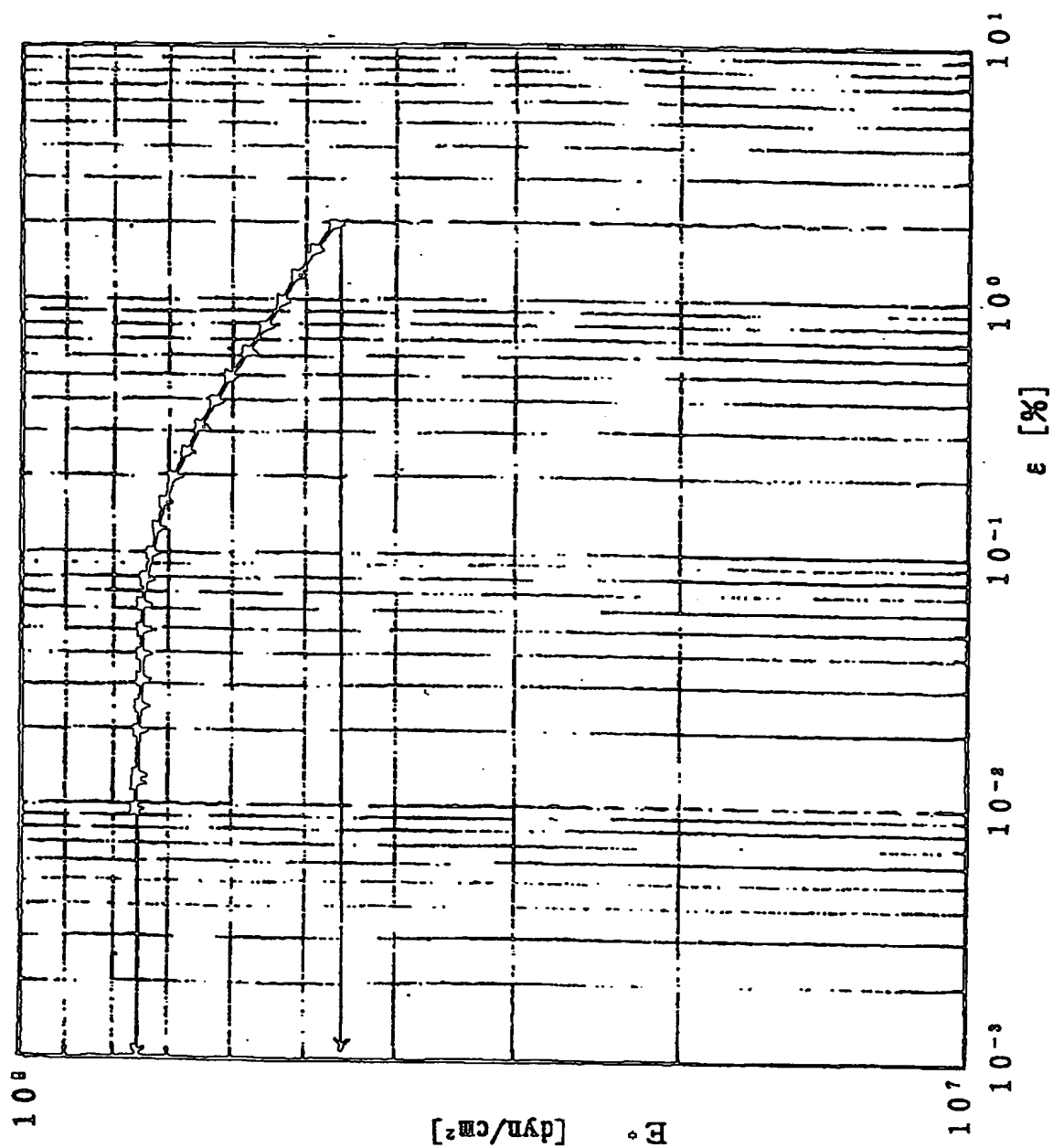
図 2 は、溶融粘度の活性化エネルギーの求め方を説明するための複素粘性率 (η^*) と周波数との関係を示すグラフである。

【図 3】

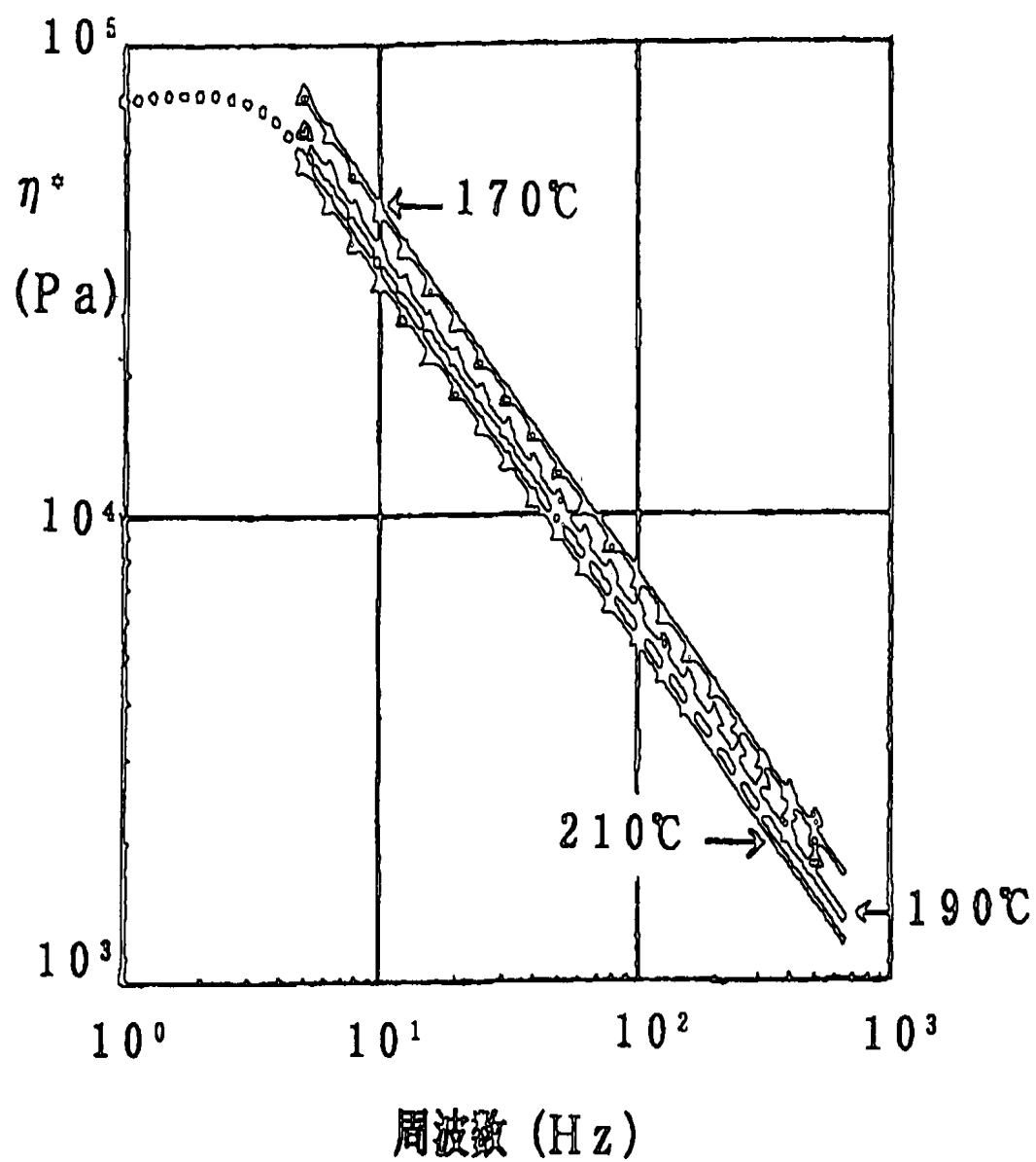
図 3 の (a) は、溶融粘度の活性化エネルギーの求め方を説明するための複素粘性率 (η^*) と周波数との関係を示すグラフであり、(b) は、シフトファクター (a_T) と温度との関係を示すグラフである。

【書類名】 図面

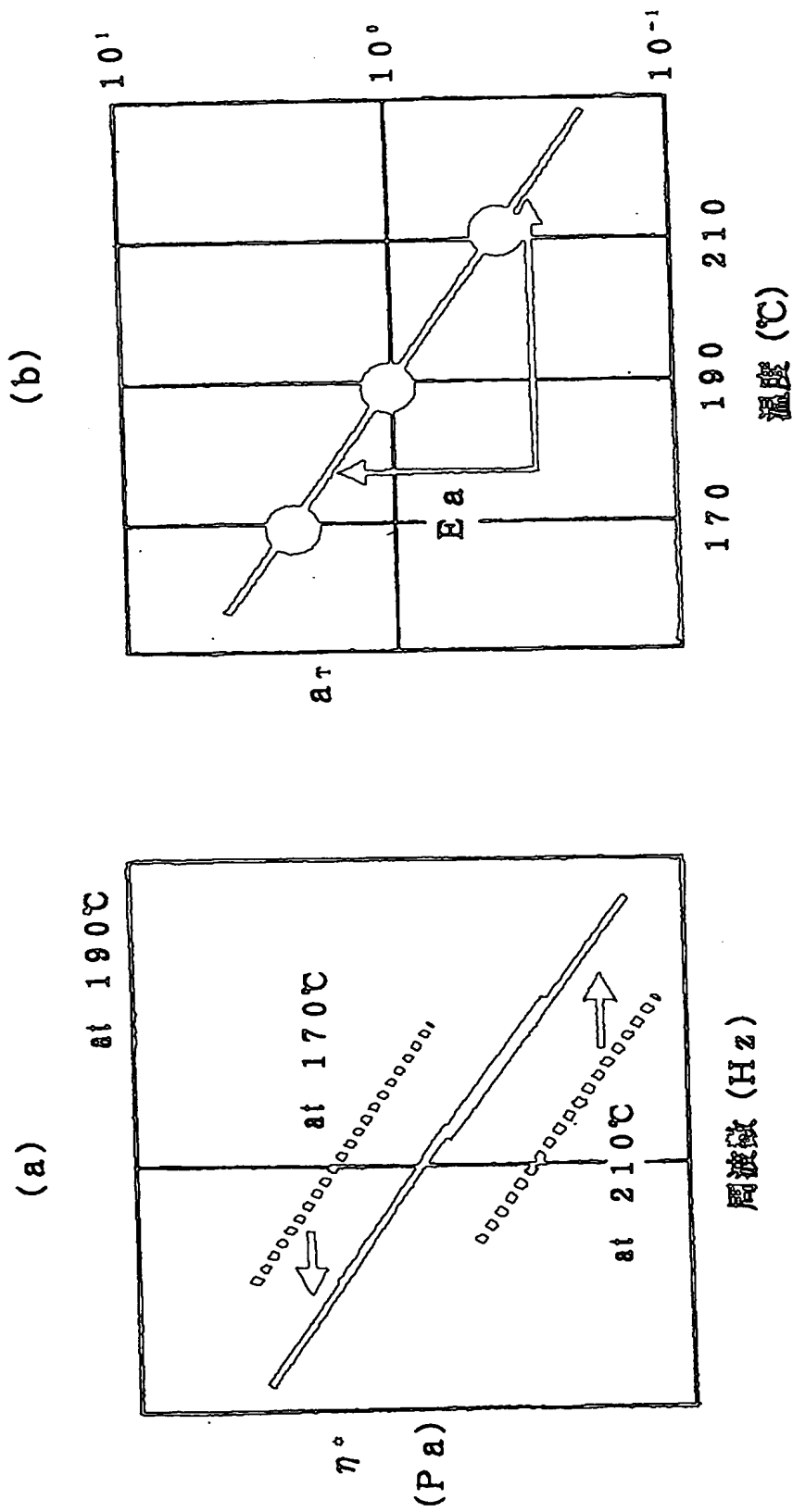
【図 1】



【図2】



【図 3】



【書類名】 要 約 書

【要約】

【解決手段】 本発明の架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物の製造方法は、少なくともエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムと、特定量の補強性フィラーたとえばカーボンブラックとを密閉式混練機により混練し、加硫剤もしくは架橋剤と、加硫促進剤もしくは架橋助剤を含む架橋用ゴム組成物の製造方法において、予め特定の方法により分析してフィラー分散指標(R)および/または混練状態把握指標(P)を求めておき、特定の方法により分析して得られたフィラー分散指標(N)が、式 $N/R=1\sim 0.8$ および/または特定の方法により分析して得られた混練状態把握指標(M)が、式 $M/P=1\sim 0.85$ を満足するように、密閉式混練機による混練条件をコントロールすることを特徴とする。本発明の架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物は、上記製造方法により得られる組成物である。

【効果】 本発明によれば、フィラー分散性が良好で、混練状態が安定している架橋用エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム組成物を経済的に得ることができる。

【選択図】 なし

特 2000-02736

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000005887]

1. 変更年月日 1997年10月 1日
[変更理由] 名称変更
住 所 東京都千代田区霞が関三丁目2番5号
氏 名 三井化学株式会社